

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

16.06.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

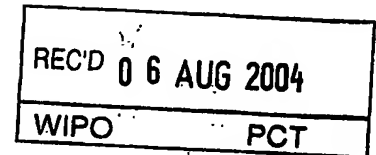
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2003年 7月18日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2003-276833

[ST. 10/C]: [JP 2003-276833]

出 願 人  
Applicant(s): 積水化学工業株式会社

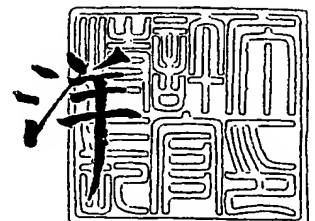


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 7月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 03P00976  
【提出日】 平成15年 7月18日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C09J201/00  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府三島郡島本町百山 2 - 1 積水化学工業株式会社内  
    【氏名】 多田 俊生  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府三島郡島本町百山 2 - 1 積水化学工業株式会社内  
    【氏名】 西村 洋平  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府三島郡島本町百山 2 - 1 積水化学工業株式会社内  
    【氏名】 豊嶋 克典  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000002174  
    【氏名又は名称】 積水化学工業株式会社  
    【代表者】 大久保 尚武  
【先の出願に基づく優先権主張】  
    【出願番号】 特願2003-109355  
    【出願日】 平成15年 4月14日  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 005083  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体を 5 MP a 以上の高圧流体中で処理することを特徴とする被着体の剥離方法。

**【請求項 2】**

被着体を 5 MP a 以上の高圧流体中に一定時間浸漬する工程を有することを特徴とする請求項 1 記載の被着体の剥離方法。

**【請求項 3】**

高圧流体は、超臨界流体又は亜臨界流体であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の被着体の剥離方法。

**【請求項 4】**

高圧流体は、離型剤を含有することを特徴とする請求項 1、2 又は 3 記載の被着体の剥離方法。

**【請求項 5】**

合わせガラスを 5 MP a 以上の高圧流体中で処理することを特徴とする合わせガラスからガラスを回収する方法。

**【請求項 6】**

接着剤により接着された電子部品積層体を 5 MP a 以上の高圧流体中で処理することを特徴とする電子部品積層体から電子部品を回収する方法。

**【書類名】明細書**

**【発明の名称】**被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法及び電子部品積層体から電子部品を回収する方法

**【技術分野】****【0001】**

本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を容易に剥離できる被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法及び電子部品積層体から電子部品を回収する方法に関する。

**【背景技術】****【0002】**

今日、接着剤は、プラスチック、ガラス、金属、木材、陶器、ゴム、紙、布、皮等あらゆるものの接着に用いられており、接着剤により接着された被着体あらゆる分野に用いられている。

近年、リサイクル等の観点から、いったん接着剤により接着された被着体を剥離して再利用することが求められている。しかし、接着剤の種類や被着体の性質、形状等によっては、被着体を剥離することは容易ではなかった。とりわけ、接着力が強固である場合や、脆弱な被着体を損傷することなく剥離したい場合には、極めて煩雑な操作が要求された。

**【0003】**

例えば、合わせガラスは、複数のガラス板を接着剤や接着性を有する中間膜を用いて貼り合わせたものである。このような合わせガラスを剥離してガラスを回収し再利用することは極めて困難であった。

特許文献1には、合わせガラスを小片に粉碎することにより、接着剤から剥がれ落ちたガラス片を再利用する方法が開示されている。しかしながら、この方法では、大量のガラス片が付着した接着剤や中間膜が残存し、これを再生することはできないことから、再利用効率が悪く極めて煩雑で高コストな方法であった。また、ガラス片が付着した接着剤や中間膜は通常炉では焼却できず特殊な炉を用いて焼却処分するしかなかった。

また、特許文献2には、合わせガラスを中間膜が軟化する温度に加熱して内板と外板とを別々に分離して回収する方法が開示されている。しかしながら、この方法でも、実際には、自動車のフロントガラス等のサイズの大きいものでは容易には分離することができず、回収したガラスの表面に接着剤が糊残りしたりすることがあるという問題があった。

**【0004】**

また、近年では電子部品同士を積層した電子部品積層体からなる高い集積度を有する電子材料が汎用されている。このような電子部品間の接続にも接着剤が用いられている。しかし、電子部品積層体から電子部品を回収してリサイクルしようとしたり、製造工程の途中で不良が発生した場合に再構成しようとしたりしても、接着剤で接着された電子部品を取り外すことは極めて困難であった。例えば、特許文献3には、半導体素子搭載基板の半導体素子搭載部に予め半導体素子の外形より小さい穴を設け、該半導体素子搭載部の基板に接着剤を設け、該接着剤上に半導体素子を搭載し、該半導体素子を基板に接着した半導体装置が開示されている。これは、電子部品同士の接着部位を最小限に抑えることにより、接着強度を弱め回収を容易にしようとするものである。しかしながら、このような方法は穴開け位置に制約があり、コストもかさむうえ、得られる電子部品積層体の強度が弱くなってしまうという重大な欠点があった。結局、従来は電子部品積層体の全てを廃棄するしかなかった。

**【0005】**

また、古紙回収により回収された接着剤を用いて製本された書籍類から、紙を回収して再利用する場合にも、紙と接着剤との剥離が問題となっている。特許文献4には、高強度でパルパーで寸断されないことからフィルターで除去しやすい接着剤を使うことで、書籍類から接着剤を取り除く方法が開示されている。しかしながら、この方法では接着剤の種類が限定されるため、広範な書籍類の再生には適さないという問題があった。

**【0006】**

更に、スチール缶を回収してこれを再利用することは、極めて重要であるが、従来は、例えば特許文献5に開示されているような、塗料樹脂を焼却する以外に手段がなく、しかもこの方法でも、完全に塗料樹脂を焼成することは困難であり炭化した塗料樹脂が残渣として残ってしまうという問題があった。

【0007】

特許文献6には、高圧雰囲気下で超臨界又は亜臨界状態の水又は極性溶媒を圧散することにより、被洗浄物に付着又は溶着した有機高分子物質を物理的かつ化学的に除去する方法が記載されている。しかしながら、この方法では、例えば、二枚の被洗浄物間に薄く形成された有機高分子物質や、複雑な形状の被洗浄物に付着した有機高分子物質に対しては超臨界又は亜臨界状態の水又は極性溶媒を直接には圧散できないことから、応用可能な範囲が極めて限定されるという問題点があった。

【0008】

【特許文献1】特開2001-104928号公報

【特許文献2】特開平6-247751号公報

【特許文献3】特開平10-135246号公報

【特許文献4】特開平6-080945号公報

【特許文献5】特開平9-227957号公報

【特許文献6】特開2002-343760号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、上記現状に鑑み、接着剤を用いて接着された被着体を容易に剥離できる被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法及び電子部品積層体から電子部品を回収する方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明は、接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体を5MPa以上の高圧流体中で処理する被着体の剥離方法である。

なお、本明細書において、接着剤には粘着剤、塗膜、塗料、多層膜等も含まれる。

以下に本発明を詳述する。

【0011】

本発明者らは、鋭意検討の結果、驚くべきことに、接着剤を用いて接着された被着体を高圧の流体中で処理することにより、極めて容易に被着体を剥離することができることを見出し、本発明を完成するに至った。

上記接着剤としては特に限定されないが、例えば、接着性を有しないベース樹脂と可塑剤とからなるもの、熱可塑性樹脂を接着成分とするもの、硬化性樹脂を接着成分とするもの、エラストマーを接着成分とするもの等が挙げられる。

【0012】

上記接着剤が、接着性を有しないベース樹脂と接着性を付与する可塑剤とからなるものである場合において、上記ベース樹脂としては、ガラス転移温度が40℃以上の熱可塑性樹脂であって可塑剤を加えることによりガラス転移温度を40℃以下にすることができるものであれば特に限定されず、例えば、ポリビニルブチラル樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン系樹脂、エチレン-酢酸ビニル系樹脂、エチレン-エチルアクリレート系樹脂、けん化度の高い高分子量ポリビニルアルコール、ポリ(メタ)アクリル酸エステル、ポリエステル系樹脂等が挙げられる。

【0013】

上記可塑剤としては特に限定されないが、例えば、上記ベース樹脂がポリビニルブチラル樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン系樹脂、エチレン-酢酸ビニル系樹脂、エチレン-エチルアクリレート系樹脂である場合には、トリエチレングリコール-2-エチルブチレート、トリエチレングリコール-2-エチルヘキサノエート、ト

リエチレングリコールジエー２－ヘプタノエート等が好適に用いられる。また、上記ベース樹脂がポリエステル樹脂である場合には、例えば、脂肪族水酸基含有化合物、芳香族水酸基含有化合物、脂肪族グリシジル基含有化合物、芳香族グリシジル基含有化合物等が好適に用いられる。これらのポリエステル樹脂に好適な可塑剤は、モノマー、オリゴマー、ポリマーのいずれの状態であってもよく、水酸基及びグリシジル基は分子骨格の末端、側鎖、分子骨格内のいずれの部位にあってもよい。また、水酸基及びグリシジル基の数は１分子あたり１個以上であることが好ましく、２個以上であることがより好ましい。

#### 【0014】

上記脂肪族水酸基含有化合物としては特に限定されず、例えば、ポリヒドロキシアルカン、アルキレングリコール、炭素数２～４のアルキレン基を有するポリオキシアルキレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール等を含む長鎖ポリオール、水酸基末端ポリアルカジエン、ビスフェノールＡのポリエチレングリコール付加物（炭素数１～３０）、ビスフェノールＡのポリエチレングリコール付加物（炭素数１～３０）、上記ポリエステル樹脂以外の水酸基末端ポリエステル、水酸基末端ポリカプロラクトン、水酸基末端ポリカーボネート、アクリルポリオール、エチレン－酢酸ビニル共重合体の（部分）けん化物、ポリビニルアルコール、ひまし油、ケトン樹脂、キシレン樹脂、及び、これらの脂肪族又は芳香族水酸基含有化合物の共重合体や変成物等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。

#### 【0015】

上記グリシジル基含有化合物としては、例えば、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＤ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂；トリスフェノールメタントリグリシジルエーテル等の芳香族エポキシ樹脂及びこれらの水添加物又は臭素化物；３，４－エポキシシクロヘキシルメチル－３，４－エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、３，４－エポキシ－２－メチルシクロヘキシルメチル３，４－エポキシ－２－メチルシクロヘキサンカルボキシレート、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシル）アジペート、ビス（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル）アジペート、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル－５，５－スピロ－３，４－エポキシ）シクロヘキサノン－メタジオキサン、ビス（２，３－エポキシシクロペンチル）エーテル（ダイセル化学工業社製、商品名「ＥＨＰＨ－３１５０」）等の脂環族エポキシ樹脂；１，４－ブタンジオールのジグリシジルエーテル、１，６－ヘキサジオールのジグリシジルエーテル、グリセリンのトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンのトリグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールのジグリシジルエーテル、炭素数２～９（好ましくは炭素数２～４）のアルキレン基を有するポリオキシアルキレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール等を含むポリオールのポリグリシジルエーテル等の脂肪族エポキシ樹脂等が挙げられる。なお、上記エポキシのグリシジル基が炭素数１～３０（好ましくは２～１６）のポリエチレンオキサイドに置換された分子も可塑剤になり得る。更にフタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、ジグリシジル－ｐ－オキシ安息香酸、サリチル酸のグリシジルエーテル－グリシジルエステル、ダイマー酸のグリシジルエステル等のグリシジルエステルエステル型エポキシ樹脂及びこれらの水添物；環状アルキレン尿素のＮ、Ｎ’－ジグリシジル誘導体、ｐ－アミノフェノールのＮ，Ｎ，Ｏ－トリグリシジル誘導体、ｍ－アミノフェノールのＮ，Ｎ，Ｏ－トリグリシジル誘導体等のグリシジルアミン型エポキシ樹脂及びこれらの水添物；グリシジル（メタ）アクリレートと、エチレン、酢酸ビニル、（メタ）アクリル酸エステル等のラジカル重合型モノマーとの共重合体；エポキシ化ポリブタジエン等の共役ジエン化合物を主体とする重合体又はその部分水添物の重合体の不飽和炭素の二重結合をエポキシ化したもの；エポキシ化ＳＢＳ等の「ビニル芳香族化合物を主体とする重合体ブロック」と「共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロック又はその部分水添物の重合体ブロック」とを同一分子内にもつブロック共重合体の共役ジエン化合物の不飽和炭素の二重結合をエポキシ化したもの；１分子あたり１個以上を有するポ

リエステル樹脂；上記各種エポキシ基含有化合物の構造中にウレタン結合やポリカプロラクトン結合を導入したウレタン変成エポキシ樹脂やポリカプロラクトン変成エポキシ樹脂；上記各種エポキシ基含有化合物にNBR、CTBN、ポリブタジエン、アクリルゴム等のゴム成分を含有させたゴム変成エポキシ樹脂等の従来公知の各種エポキシ基含有化合物が挙げられる。

【0016】

なお、このような接着性を有しないベース樹脂と可塑剤とからなる接着剤には、溶剤系の接着剤も含まれる。例えば、ポリビニルアルコール水溶液は、ベース樹脂であるポリビニルアルコールに可塑剤として水を加えたものであると考えることができる。

【0017】

上記接着剤が熱可塑性樹脂を接着成分とするものである場合において、上記熱可塑性組成樹脂としては、ガラス転移温度が40℃以下であれば特に限定されず、例えば、該条件を満たすポリ酢酸ビニル、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリビニルブチラール等のビニル系樹脂；ポリ（メタ）アクリル酸、ポリ（メタ）アクリル酸エステル等のアクリル系樹脂；ポリエステル系樹脂、ニトロセルロース、でんぷん等が挙げられる。

【0018】

上記接着剤が硬化性樹脂を接着成分とするものである場合において、上記硬化性樹脂としては特に限定されず、例えば、フェノール樹脂、レゾルシン樹脂、フラン樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂等が挙げられる。

【0019】

上記接着剤がエラストマーを接着成分とするものである場合において、上記エラストマーとしては特に限定されず、天然ゴムの他、ブタジエンアクリロニトリルゴム、スチレンーイソプレンースチレン系樹脂、スチレンーエチレンーブタジエンースチレン系樹脂、エチレンープロピレングム、スチレンーブタジエンースチレン系樹脂等の合成ゴムが挙げられる。これらのゴムは水素添加されていてもよい。また、これらのゴムは可塑剤を配合して可とう性が付与されたものであってもよい。

【0020】

本発明の被着体の剥離方法では、これらの接着剤により接着された被着体を高压の流体中で処理する。

上記流体の圧力は5MPa以上である。5MPa未満であると、被着体が十分に剥離できないことがある。

上記流体は、超臨界流体又は亜臨界流体であることが好ましい。

本明細書において、超臨界流体とは、臨界圧力（以下、 $P_c$ ともいう）以上、かつ臨界温度（以下、 $T_c$ ともいう）以上の条件の流体を意味する。また、亜臨界流体とは、超臨界状態以外の状態であって、反応時の圧力、温度をそれぞれ $P$ 、 $T$ としたときに、 $0.5 < P/P_c < 1.0$ かつ $0.5 < T/T_c$ 、又は、 $0.5 < P/P_c$ かつ $0.5 < T/T_c < 1.0$ の条件の流体を意味する。上記亜臨界流体の好ましい圧力、温度の範囲は、 $0.6 < P/P_c < 1.0$ かつ $0.6 < T/T_c$ 、又は、 $0.6 < P/P_c$ かつ $0.6 < T/T_c < 1.0$ である。ただし、流体が水である場合には、亜臨界流体となる温度、圧力の範囲は、 $0.5 < P/P_c < 1.0$ かつ $0.5 < T/T_c$ 、又は、 $0.5 < P/P_c$ かつ $0.5 < T/T_c < 1.0$ である。なお、ここで温度は摂氏を表すが、 $T_c$ 又は $T$ のいずれかが摂氏ではマイナスである場合には、温度に関しては亜臨界状態を満たしているものとして扱い、圧力が $0.5 < P/P_c$ の条件を満たすときには亜臨界状態にあるものとする。

【0021】

上記流体としては、水又は常温常圧で液体の有機溶媒であることが好ましい。これらは単独で用いられてもよいし、混合流体として用いられてもよい。水は使いやすい流体であるうえ、安価であるので経済的であり、環境に与える影響の点でも好ましい。また、有機溶媒の中でもアルコールは同様の理由により好ましい。

上記有機溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、エチレングリコール、グリセリン等のアルコール；ヘキサン、ヘプタン、イソブタン、イソペンタン、ネオペンタン、シクロヘキサン、ブテン等の飽和、不飽和、直鎖、分岐、環状飽和炭化水素；トルエン、ベンゼン、スチレン、キシレン等の芳香族炭化水素系有機溶剤；アセトン、イソブチルメチルケトン、イソプロピルメチルケトン、メチルエチルケトン等のケトン系有機溶剤；イソ吉草酸、酢酸等のカルボン酸系化合物；ジエチルエーテル、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル系有機溶剤；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル系有機溶剤；ヘキサメチレンジアミン等のアミン系有機溶剤；（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル等のアクリル系有機溶剤；ジメチルスルホキシド、N、N-ジメチルホルムアミド、N、N-ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン等が挙げられる。これらの有機溶媒は、ハロゲン化等によりその一部又は全部が変性されていても構わない。

#### 【0022】

上記流体として水又は有機溶媒を用いる場合には、接着剤に対して貧溶媒を用いることが好ましい。良溶媒を用いた場合には、接着剤が流体に溶解したり膨潤したりして、剥離した被着体の表面に再付着してしまうことがあり、これを完全に除去するのは困難である。貧溶媒を用いた場合には、このような再付着が起こることがなく、容易に完全に接着剤を除去することができる。ただし、被着体の剥離を主目的とし、特に少量の接着剤が残留してもよい場合には、この限りではない。

なお、本明細書において良溶媒とは、高圧流体で処理される条件において、接着剤を溶媒中に浸漬したときに、接着剤を寸法的に20%以上膨潤させるか、又は、10%以上溶解させる溶媒を意味し、貧溶媒とは、それ以外の溶媒を意味する。

#### 【0023】

また、上記流体としては、二酸化炭素、窒素、酸素、水素、ヘリウム、ネオン、アルゴン、空気等の常温常圧で気体であるものも好適である。上記流体として常温常圧で気体であるものを用いた場合には、剥離後の流体の分離が極めて容易である。

二酸化炭素等を用いた場合には、水等に比較して低温低圧で超臨界状態又は亜臨界状態となることから、被着体が耐熱性又は耐圧性に劣る場合にも利用することができる。

また、流体として二酸化炭素を用いる場合には、常温常圧で液体の場合と同じく、メチルアルコール、エチルアルコール、イソプロパノール等を少量添加し、モディファイヤー（改質剤）として用いてもよい。

更に、水と二酸化炭素とを併用してもよい。

二酸化炭素の供給は気体又は液体で行ってもよいが、封入量を簡単に計測できるようにドライアイスを用いてもよい。

なお、上記流体として混合流体を用いた場合には、混合流体を構成する流体の少なくとも1成分が上記条件を満たしていればよい。

#### 【0024】

上記流体は、離型剤を含有してもよい。通常、接着剤の内部に離型剤を浸透させることは困難であるが、本発明の被着体の剥離方法では、高圧の流体中で処理を行うことから、流体中に溶媒和された離型剤が接着剤の内部に浸透することができ、極めて高い剥離効果を発揮できる。とりわけ接着剤が硬化性樹脂又はエラストマーを接着成分とする場合には、この効果が顕著である。

#### 【0025】

上記離型剤としては特に限定されないが、例えば、界面活性剤、各種イオンを発生する有機塩、各種イオンを発生する無機塩、キレート化合物、低分子量有機化合物等が挙げられる。

上記界面活性剤としては特に限定されず、脂肪酸（塩）、 $\alpha$ スルホ脂肪酸エステル（塩）、アルキルベンゼンスルホン酸（塩）、アルキルエーテル硫酸エステル（塩）、アルキル硫酸トリエタノールアミン等の陰イオン系；アルキルトリメチルアンモニウム（塩）、ジアルキルジメチルアンモニウムクロリド、アルキルピリミジニウムクロリド等の陽イオン



系；アルキルカルボキシベタイン等の両イオン系；脂肪酸ジエタノールアミド、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル等の非イオン系のいずれも用いることができる。

上記各種イオンを発生する有機塩としては特に限定されず、例えば、カルボン酸塩、リン酸塩、硫酸塩、硝酸塩等が挙げられる。なかでも、合わせガラスに用いられる接着剤等に対しては、酢酸マグネシウム等のカルボン酸マグネシウムが好適である。

上記各種イオンを発生する無機塩としては特に限定されず、例えば、アルカリ金属（塩）、アルカリ土類金属（塩）等が挙げられる。

上記キレート化合物としては特に限定されず、例えば、エチレンジアミン四酢酸（塩）、ニトリロ三酢酸（塩）、ヒドロキシイミノ二酢酸（塩）等のカルボン酸（塩）；水素基含有

化合物；ヒドロキシエチリデン二リン酸等のホスホン酸系等が挙げられる。

上記低分子量有機化合物としては特に限定されず、例えば、フッ素含有化合物；シリコンオイル等のケイ素含有化合物等が挙げられる。

また、接着成分が水酸基、エステル基、アミノ基、カルボニル等の親水基を有する場合には、水も有効な離型剤として作用し得る。

これらの離型剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

#### 【0026】

上記被着体を高圧流体中で処理する方法としては特に限定されないが、少なくとも、被着体を5 MPa以上の高圧流体中に一定時間浸漬する工程を有することが好ましい。被着体を5 MPa以上の高圧流体中に一定時間浸漬する方法としては、特に限定されないが、例えば、被着体と流体とを耐圧容器内に入れ、温度をかけることにより流体の圧力を5 MPa以上にし、この状態で一定時間置く方法等が挙げられる。

#### 【0027】

被着体を5 MPa以上の高圧流体中に一定時間浸漬する工程においては、振動させたり超音波照射したりする等、被着体に対して物理的な力を加えてもよい。物理的な力を加えることにより、被着体の剥離をより一層促進することができる。

#### 【0028】

本発明の被着体の剥離方法は、必要に応じて、高圧流体中に一定時間被着体を浸漬する工程に続いて、更に流体を急激に解圧する工程を有していてもよい。ここで解圧とは、高圧状態にある流体の圧力を低下させることを意味する。後工程を考えると、上記解圧は最終的には常圧にまで行うことが好ましい。流体を急激に解圧する方法としては特に限定されず、例えば、圧力容器に接続されたバルブを開放する方法等が挙げられる。なお、加圧のプロセスと解圧のプロセスとは、複数回繰り返して行ってもよい。

#### 【0029】

本発明の被着体の剥離方法においては、流体の種類、流体の温度や圧力、被着体を高圧流体中に浸漬する時間、解圧の方法等を選択することにより、種々の態様により被着体の剥離を行うことができる。これらの条件は、被着体の種類、接着剤の種類、剥離の目的等により適宜選択される。

#### 【0030】

例えば、接着剤が接着性を有しないベース樹脂と接着性を付与する可塑剤である場合には、流体として二酸化炭素を選択して比較的低温度で長時間処理を行うことにより、ベース樹脂を分解することなく低分子量物質である可塑剤を流体に溶解して接着剤の接着性を失わせ、被着体を剥離できると同時に、ベース樹脂をも回収しリサイクルすることができる。

#### 【0031】

また、例えば、耐熱性が高い被着体を回収する場合にあっては、流体として水等を選択して高温高圧で処理することにより、接着剤の少なくとも1成分を分解し、分解した低分子量物質を流体に溶解して接着剤の接着性を失わせ、被着体を剥離できる。流体として水を用いれば、接着剤の分解はより一層促進される。また、分解促進剤として、例えば、過

酸化水素水、過酢酸等のペルオキシ酸；過硫酸アンモニウム、過硫酸ナトリウム、過硫酸カリウム等の過硫酸塩類；炭酸ナトリウムの過酸化水素付加化合物等の過炭酸ナトリウム（塩）；過酸化ジイソプロピル等のペルオキシ基を有する過酸化物等を併用してもよい。更に、各種の酸触媒又はアルカリ触媒を用いてもよい。

この方法は、被着体に物理的な衝撃がかからないことから、被着体が脆弱である場合にも適している。

#### 【0032】

更に、例えば、接着剤が分解しにくいものである場合には、流体を接着剤中に含浸させ、急激に解圧することにより接着剤を発泡させて接着剤の接着性を失わせ、被着体を剥離できる。

なお、加圧のプロセスと解圧のプロセスとは、必要に応じて複数回繰り返して行ってもよい。

#### 【0033】

これらの被着体の剥離の態様は、必ずしも単独で起こるものではなく、複数の態様が複合的に起こることにより被着体が剥離する。また、複数の態様を複合的に起こすことにより、より容易に被着体を剥離することができる。

#### 【0034】

本発明の被着体の剥離方法は、例えば、図1に示したような簡単な装置を用いて行うことができる。図1の装置は、ヒーター3を備え固定ネジ2を用いて密封できる構造を有する耐圧容器1に、攪拌羽5及びポンプ7及びストップバルブ8を介して流体貯蔵槽6が取り付けられている。耐圧容器1の温度は熱電対4で、圧力は圧力計9で制御される。更に、耐圧容器1には、解圧用のバルブ10が接続されている。

なお、図1の装置では加熱手段としてヒーター3を用いたが、その他にも、例えば、バーナー、燃焼ガス、蒸気、熱媒、サンドバス、溶融金属槽等の加熱手段を用いることができる。

#### 【0035】

図1に示した装置を用いて本発明の被着体の剥離方法を行うには、例えば、まず、接着剤で接着された被着体を容器1に投入し、固定ねじ2により十分にシールし、流体貯蔵槽6に貯蔵した流体を容器1に導入した後、ヒーター3により所定温度に加熱し、流体の圧力を所定の圧力にまで上昇する。攪拌羽5により攪拌しながら所定の時間置いた後、素早く冷却し、十分に冷却した後容器1を開けば、剥離した被着体が得られる。また、必要に応じてバルブ10を操作して解圧を行う。

#### 【0036】

本発明の被着体の剥離方法によれば、接着剤で接着された被着体を極めて容易に剥離することができる。剥離し回収した被着体はリサイクル等に供することができる。

#### 【0037】

本発明の被着体の剥離方法に供する被着体としては、接着剤により接着されたものであれば特に限定されないが、複雑な形状を有するものや、脆弱なものである場合には、本発明の被着体の剥離方法が特に有効である。このような被着体としては、例えば、合わせガラス、電子部品積層体、封止剤で接着された液晶表示装置、各種の家電製品や建築材料等が挙げられる。また、上記電子部品積層体には、スタック型半導体や積層基板等が含まれ、回収される電子部品には、ウエハやチップ、基板等が含まれる。更に、従来は焼成する以外に方法のなかった缶飲料の塗料や、パルプの再生に障害であった製本用接着剤等も剥離することができる。

#### 【0038】

合わせガラスを5MPa以上の高圧流体中で処理する合わせガラスからガラスを回収する方法もまた、本発明の1つである。

合わせガラスは、通常、2枚のガラスを接着性を有しないベース樹脂と接着性を付与する可塑剤からなる中間膜を用いて貼り合わせてなる。

このような合わせガラスを、例えば、超臨界状態又は亜臨界状態の二酸化炭素中に所定時

間浸漬すれば、ガラスとベース樹脂とは完全に剥離し、2枚のガラスとベース樹脂とを回収できる。合わせガラスは小片に破碎する必要もなく、また、ベース樹脂中にもガラス片が含まれないことから、極めて容易にリサイクルを行うことができる。このとき二酸化炭素中に水や離型剤を含有させれば、より一層剥離が容易になる。

#### 【0039】

合わせガラスを剥離する場合には、例えば、二酸化炭素の浸透性を向上させるために、予め数十cm四方の大きさに切断した合わせガラスを比較的容量の小さなオートクレーブバッグにドライアイスと少量の水とを共に封入し、封入したバッグを複数個ラインにかけ、加熱処理した後解圧し、ガラスと中間膜とを分離した後回収してもよい。

#### 【0040】

接着剤により接着された電子部品積層体を5MPa以上の高圧流体中で処理する電子部品積層体から電子部品を回収する方法もまた、本発明の1つである。

例えば、エポキシ樹脂を接着成分とする接着剤を用いて電子部品を接着して積層した電子部品積層体から電子部品を剥離する場合には、電子部品積層体を二酸化炭素等の高圧流体中に所定の時間浸漬した後、急激に解圧すれば、剥離した電子部品を回収できる。

#### 【発明の効果】

#### 【0041】

本発明によれば、接着剤を用いて接着された被着体を容易に剥離できる被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法及び電子部品積層体から電子部品を回収する方法を提供できる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0042】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

#### 【0043】

##### (実施例1)

幅13mm、長さ25mm、厚さ1mmのガラス板2枚を、表1に示した各種の接着剤を用いて図2に示したように接着した。なお接着にあたっては、接着剤が液状又はゲル状である場合には接着剤層の厚さが50 $\mu$ mになるように塗布して接着を行い、接着剤が基材に積層されたテープ状である場合には、テープをローラーで密着させた。

#### 【0044】

得られた被着体を図1に示した装置の容器1（耐圧硝子社製、樽型容器、内容積100mL）に投入し、固定ねじ1を用いて十分にシールした後、容器1を所定の温度に加熱した。次いで、ストップバルブ8を開き、ポンプ7により流体貯蔵槽6に貯蔵していた流体を容器1に導入し、容器内の圧力を所定の圧力まで上昇させ、所定時間保持した。その後、容器1を冷却浴により急速に冷却、又は、解圧用バルブ10を操作して急激に解圧した。容器1を開けて被着体を取り出し、剥離の状態を目視にて観察した。

結果を表1に示した。

#### 【0045】

【表1】

接着剤	接着剤形状	流体	離型剤	処理条件				剥離状態		
				温度／℃	圧力／MPa	処理時間／時間	解圧操作			
シアノアクリレート系	液状	二酸化炭素	—	120	20	3	なし	一部糊残りがあったが容易に取り除けた		
	液状			120	20	3	あり	完全に剥離		
	液状			120	5	3	あり	一部糊残りがあったが容易に取り除けた		
アクリル系	テープ			40	20	3	なし	完全に剥離		
	テープ			40	5	3	あり	完全に剥離		
	テープ			40	20	3	なし	完全に剥離		
ゴム系	テープ			40	5	3	あり	完全に剥離		
	液状			120	20	3	なし	一部糊残りがあったが容易に取り除けた		
エポキシ系	液状			120	20	3	あり	完全に剥離		
	液状			120	5	3	あり	一部糊残りがあったが容易に取り除けた		
	液状			120	20	3	あり	完全に剥離		
シリコン系	液状			水	—	100	20	3	あり	一部糊残りがあったが容易に取り除けた
	シート					250	20	0.5	なし	完全に剥離
	(合わせガラス)					250	20	0.5	なし	完全に剥離
液状	250					20	0.5	なし	完全に剥離	
液状	200					15	0.5	なし	完全に剥離	
液状	200	15	0.5			なし	完全に剥離			
シアノアクリレート系	液状	10重量% メタノール 水溶液	—	200	15	0.5	なし	完全に剥離		
	液状			200	15	0.5	なし	完全に剥離		
	液状			40	10	3	なし	完全に剥離		
エポキシ系	2.5Vol% 水			40	10	3	なし	完全に剥離		
	2.5Vol% 酢酸マグネシウム水溶液			40	10	3	なし	完全に剥離		
	2.5Vol% シリコンオイル			40	10	3	なし	完全に剥離		
シリコン系	シート	二酸化炭素 (合わせガラス)	—	40	10	3	なし	完全に剥離		
	液状			40	10	3	なし	完全に剥離		
	液状			40	10	3	なし	完全に剥離		
ポリビニル ブチラール系	シート	二酸化炭素 (合わせガラス)	—	40	10	3	なし	完全に剥離		
	液状			40	10	3	なし	完全に剥離		
	液状			40	10	3	なし	完全に剥離		

【0046】

(比較例1)

表2に示した条件により被着体を剥離した以外は実施例1と同様の方法を行った。  
結果を表2に示した。

【0047】

【表 2】

接着剤	接着剤形状	流体	処理条件				剥離状態
			温度/°C	圧力/MPa	処理時間/時間	解圧操作	
シアノアクリレート系	液状	二酸化炭素	120	4	3	なし	剥離せず
エポキシ系	液状		120	4	3	なし	剥離せず
シリコン系	液状		120	4	3	なし	剥離せず
アクリル系	テープ		40	4	3	なし	剥離せず
ポリビニル ブチラール系	シート (合わせガラス)		40	4	3	なし	剥離せず
ゴム系	テープ		40	4	3	なし	剥離せず
シアノアクリレート系	液状	水	250	4	0.5	なし	一部に深刻な糊残りがあった
エポキシ系	液状		250	4	0.5	なし	一部に深刻な糊残りがあった
シリコン系	液状		250	4	0.5	なし	剥離せず
シアノアクリレート系	液状	10重量% メタノール水溶液	200	4	0.5	なし	一部に深刻な糊残りがあった
エポキシ系	液状		200	4	0.5	なし	一部に深刻な糊残りがあった
シリコン系	液状		200	4	0.5	なし	剥離せず

【0048】

(実施例 2)

ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700、残存アセチル基 1mol%、ブチラール化度 69mol%）100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）41重量部を添加混合し、押出機により溶融混練りし

、押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート（PVBシート）を得た。

次いで、一對のエンボスロールを用いて、得られたPVBシートの両面に微細な山形の凹凸からなる多数のエンボスを付与し、両面にエンボス模様が形成された合わせガラス用中間膜を製造した。得られた合わせガラス用中間膜を温度20～25℃、湿度25～30%RHの雰囲気下に2時間放置して調湿した。

次いで、得られた合わせガラス用中間膜を、二枚の透明な無機平板ガラス（10cm角、厚さ1mm）の間に挟んで合わせガラス構成体（積層体）とし、これをゴムバックにいれ、それを更に厚さ5mmのステンレス製プレス用鋼板で挟み、ゴムバック内の圧力を16kPaまで減圧し、温度130℃条件で脱気、真空プレスを行って合わせガラスを作製した。

#### 【0049】

得られた合わせガラスを図1に示した装置の容器1（耐圧硝子社製、樽型容器、内容積100mL）に投入し、固定ねじ1を用いて十分にシールした後、容器1を所定の温度に加熱した。次いで、ストップバルブ8を開き、ポンプ7により流体貯蔵槽6に貯蔵していた流体を容器1に導入し、容器内の圧力を所定の圧力まで上昇させ、所定時間保持した。その後、容器1を冷却浴により急速に冷却した。

容器1を開けて被着体を取り出し、剥離の状態を目視にて観察した。

結果を表3に示した。

#### 【0050】

【表3】

流体	離型剤	処理条件				剥離状態
		温度	圧力	処理時間	解圧操作	
二酸化炭素	—	120	5	3	なし	完全に剥離
	—	80	120	3	なし	完全に剥離
	水	80	120	3	なし	完全に剥離
	1重量%酢酸マグネシウム水溶液	80	120	3	なし	完全に剥離
	シリコンオイル	80	120	3	なし	完全に剥離
水	—	250	20	0.5	なし	完全に剥離
10重量%メタノール水溶液	—	200	15	0.5	なし	完全に剥離

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0051】

本発明によれば、接着剤を用いて接着された被着体を容易に剥離できる被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法及び電子部品積層体から電子部品を回収する方法を提供できる。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0052】

【図1】本発明の被着体の剥離方法を実施するための装置の1実施態様を示す模式図である。

【図2】実施例1で用いた被着体を示す模式図である。

#### 【符号の説明】

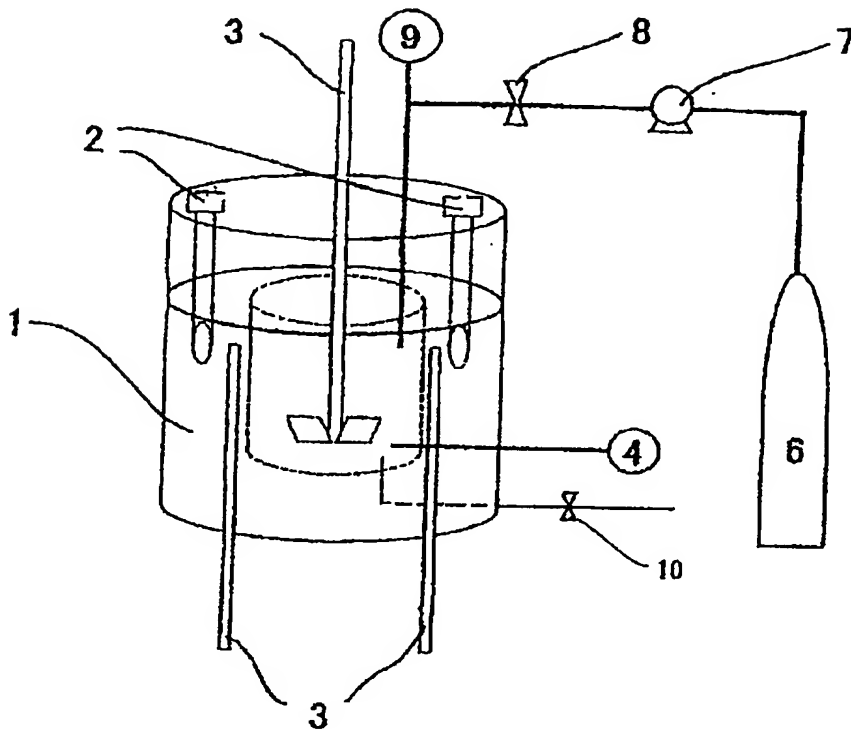
#### 【0053】

- 1 容器
- 2 固定ネジ
- 3 ヒーター
- 4 熱電対

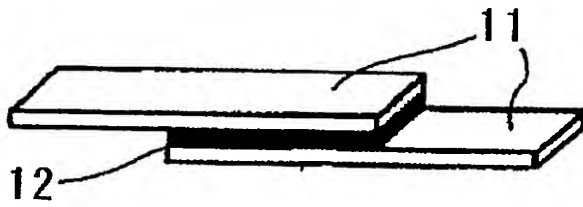
- 5 攪拌羽
- 6 流体貯蔵槽
- 7 ポンプ
- 8 ストップバルブ
- 9 圧力計
- 1 0 解圧用バルブ
- 1 1 ガラス板
- 1 2 接着剤

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】 合わせガラスや電子部品積層体等のような接着剤を用いて接着された被着体をリサイクル等に供することができるように、容易に、かつ、糊残りしにくく剥離して回収することができる被着体の剥離方法、合わせガラスからガラスを回収する方法、及び、電子部品積層体から電子部品を回収する方法を提供する。

【解決手段】 接着剤を用いて接着された被着体を剥離する方法であって、被着体を 5 MPa 以上の高圧流体中で処理する被着体の剥離方法。

【選択図】 なし

特願 2003-276833

ページ: 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000002174]

1. 変更年月日

1990年 8月29日

[変更理由]

新規登録

住所

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

氏名

積水化学工業株式会社